

BEST AVAILABLE COPY



特許庁
 特許 第 248226 号
 出願日 1972年4月27日
 出願番号 第 248226 号

特 許 証

昭和48年 4月23日

特許庁長官 三 宅 幸 次 殿

1. 発明の名称
 多官能系加剤

2. 発明者

位 所 アメリカ合衆国ニュージャージー州 08029
 グラスボロー、フルフレッド・アベニュー 129番
 氏 名 シモン・チュークンイエア・サディ (外1名)

3. 特許出願人

位 所 アメリカ合衆国ニューヨーク州ニューヨーク市
 イースト・フォーティセカンド・ストリート150番
 名 称 (740) モービル・オイル・コーポレーション

代表者 ナゲル・ス・エイ・ハグネル

国 籍 アメリカ合衆国

4. 代理人

位 所 東京都千代田区大手町二丁目2番1号
 新大手町ビル206号室
 電 話 東京(270) 6541番
 氏 名 (2770) 弁理士 渡 辺 昭 三 (外1名)

48 045214

⑨ 日本国特許庁
 公開特許公報

①特開昭 49-22388
 ③公開日 昭49.(1974) 2.21
 ②特願昭 48-45212
 ②出願日 昭48.(1973) 4.23
 審査請求 未請求 (全12頁)

庁内整理番号

6575 4A
 6794 4I
 6865 4L

⑤日本分類

13B93
 18E0
 54B101

明 細 書

1. [発明の名称]

多官能系加剤

2. [特許請求の範囲]

有機溶剤と置換炭素環状置換化合物よりなる組成物にして、該置換炭素環状置換化合物は1-3個の結合基-N=C-N-[式中-N=C部分の置換および炭素原子に付着した酸素原子は置換炭素環状置換基の縮合であり、C-N部分に置換炭素環状化合物に付着した置換基を含む置換炭素環状化合物に付着した置換基を含む置換炭素環状化合物の一部であり、置換炭素環状置換基は3個の-N=C-N-基を含む場合少なくとも置換炭素の1つはアミノ基およびアミノ基よりなる群より選ばれる]を有することよりなる組成物。

3. [発明の詳細を説明]

本発明は組成物用の新規な系加剤、特に連結した多官能系加剤を含む炭化水素置換組成物に関する。

米国特許第3,172,892号および第

3,218,666号にはコハク酸化合物とポリアミンから誘導した無灰系加剤が開示され、米国特許第3,024,195号はアルケニルサクシンイミド、N-アルキルピペラジンを含む無灰系加剤を開示しており、米国特許第3,200,076号はアルケニル・コハク酸化合物とポリピペラジニアルキレンとの化合物を開示し、米国特許第3,455,386号にはポリプロピニル・サクシンイミド誘導体が記載されている。米国特許第3,368,972号にはマンニンと塩基の製造について述べている。

特許第2238880号

これらの特許に記載された化合物は連結された分子を含んでいない。これらの化合物は燃料清浄剤として用いられることが知られているが、たとえば高圧高圧、長時間作動のエンジン潤滑剤としてこれらの化合物は有効と見なされる。

グァンチー外の米国特許第3,278,436号、グリンテレー外の米国特許第3,574,173号およびグァンチー外の米国特許第3,424,683号にはトリアジンとピリミジン化合物を開示している。しかし、これら特許のいずれも長鎖または重合体を複素環系に連結することを開示するものではない。

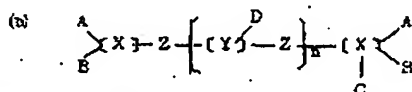
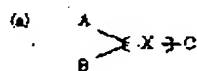
米国特許第3,623,985号はトリアジン核に結合したトリサクシンイミドを開示している。生成化合物は清浄性能を有すると述べられている。

これらトリサクシンイミド置換のトリアジンは本発明によるトリサクシンイミドピリミジンまたはジサクシンイミド-アミノ-ピリミジンとトリアジンとの化合物、あるいは多重置換のトリアジンまたはピリミジンとは同一の化合物でない。

工業用固体および液体用の新穎な多官能添加剤は1またはそれ以上の置換基が複素性環系原子を通じて複素環系化合物に連結しており、その分子は1-3個の結合基 $-N=C-N-$ を含み、式中 $-N=C-$ 部分は複素環系の一部を形成し、 $C-N-$ 部分は脂肪族環系と、アミノ基またはアミノ基またはそれらの誘導体またはアルケニルサクシンイミドまたはアルケニルまたはアルケニルラクトムまたはテトラヒドロピリジンから誘導された基またはマンニツヒ塩基の置換原子と

の間の価数(bond)を形成し、複素環系中に3個のこのような $-N=C-N-$ 結合基がある場合には少なくとも1個の $C-N-$ 部分はアミノまたはアミノまたは他の非サクシンイミドである。

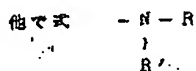
本発明の添加剤は次記構造の何れかを有している。



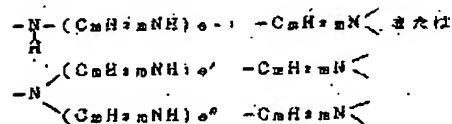
式中各X、Yはピリジン、シアジン、(ピリダジン、ピリミジン、ピラジン)またはトリアジンから誘導した複素環系であり、(b)の場合は同一または異種でありうる。Zはアンモニア、アミンまたはジアミンまたはより高級のポリアミンから誘導

した二価基；nは0または少なくとも1以上、好ましくは1-10の整数であり；A、B、CおよびDは各々水素またはアルキル、アラキル、アルケニル、アリール、アルカリール、ヒドロキシアルキル、ヒドロキシアリール、カルボキシ、アルキルカルボキシ、ヒドロキシ、ホスホノ、ホスファート、スルホナト、メルカプト基または硫黄含有置換基であり、A、B、CまたはDの少なくとも1つが複素性置換基であるとすればA、B、CおよびDの有機基は1-約500個の炭素原子、好ましくは1-約100個の炭素原子をもつ。したがって上記の基はメチル、エチル、プロピル、デシル、オクタデシル、フスニトリール、ベンチル其他の低分子量の基またはポリエチレン、ポリプロピレン、ポリブテン、ポリビニル、ポリス

ナレン等の置換体から誘導した基でありうる。こ
うに言う置換含有置換基には、アミノ、アエリノ、
サクシンイミドアミノ、ラクタムアミノおよび其
他で式

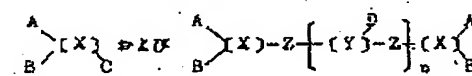


(式中、RおよびR' は各々水素、アルキル、アラ
ルキルおよびヒドロキシアルキル、アリール、ヒ
ドロキシアリール、アルカリールまたはR、R'
の一方または両者がアルキレンポリアミノ基
- (C_mH_{2+m}NH) _q H (ここにmは1-5の整数で
あり、qは少なくとも1以上、好ましくは1-約
10の整数である) であるか、または



Dはq個のY基の各々に対し同一であるかまたは
異なる。

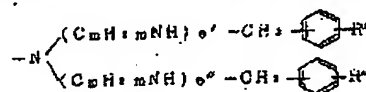
本発明のより好ましい化合物は次記構造をもつ
化合物である。



式中各XおよびYはピリジン、ピリミジンまたは
ドリフジンであり、A、BおよびCは炭素原子1
-100個以上を有するアミノ、アエリノ、アル
キルアミノまたはアルキルアエリノ即ちイミドア
ミノ、ビス(イミド)アミノ、ラクタムアミノ、
またはビス(ラクタム)アミノであり、Dはこれ
らの基の1つであるかまたは水素であり、nは0
-6、Zはイミノまたはアルキレンポリアミノ基
である。

特開昭49-22388(3)

(式中Nはサクシンイミド、ラクタムまたはピ
ロリジン基を表わし、q'およびqの合計は0
-10である) の如きアルケニルサクシンイミド、
アルキレン・アミノまたはアルキルラクタム・ア
ルキレンアミノまたはアルキル・テトラヒドロピ
ロリジン・アルキレンアミノであるか、またはア
ルキルフェノール・メチレンアミノ(即ち本図所
示の3,6,9,72号のベンゼン塩基)。



(式中R'' は好ましくは少なくとも8個以上の炭
素原子をもつアルキル基) を有するものを含む。

前述の通り、(b)型の分子中の各XおよびYは同
一であるかまたは異なっており、A、BおよびC
は各X基に対し同一であるかまたは異なっており、

好ましくは、各X基上の少なくとも1つの置換
基はアミノ基またはアルケニルサクシンイミドア
ミノまたはビス(アルケニルサクシンイミド)ア
ミノ基またはアルキルまたはアルキルラクタム
またはピロリジンアミノまたはビス(アルキルま
たはアルケニルラクタムまたはピロリジン)アミ
ノ基またはアルキル置換フェノールメチレンアミ
ノまたはビス(フェノールメチレン)アミノ基
(各基は各アルキルまたはアルケニル基中に少な
くとも8個の炭素原子を有し且10,000個の炭
素原子にかよぶ) またはこれらの基の組合せより
成る。

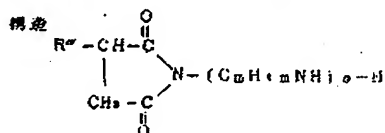
これら好ましい置換基のアルケニルおよびアル
キル基は好ましくは炭素原子8-約300個、特
に炭素原子20-200個を含む。

特開 昭49-223894

特に本発明の化合物は一般にハロゲン化炭素置換化合物即ちジ-またはトリクロロピリミジンまたはシアヌクロライドと所望の置換基を供給するために必要な反応体、少なくともその1つは塩基性置換化合物である反応体と反応させて製造する。

(a)型化合物を製造するためにはアンモニア、第1アミン、ジアミンおよび高級ポリアミンを付加的な置換基結合を導くのに使用する。この置換反応は好ましくは0.5-1.5時間、温度70-250℃で行う。

複素置換化合物として塩基化ピリミジンを利用本発明の典型的な化合物の製造を説明するため



アミノ-グ-サクシンイミドアミノ・ピリミジン

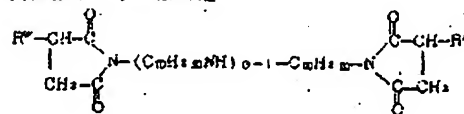
はアミノ置換化合物を導くことによつて得られる。

(b)型添加剤を得るためには所望の置換反応環境に少なくとも1個のハロゲン原子を残す。

置換したモノ・ハロ複素置換即ちモノクロロ-ジ-アルケニルサクシンイミドアミノピリミジンをアンモニアまたは第一アミンまたは好ましくはポリアルキレンポリアミン、 $\text{H}_2\text{N} - (\text{C}_6\text{H}_4)_m \text{NH}_2$ 、即ちエチレンポリアミン ($m=2$)、ニエチレンジアミン ($m=1$)、ジエチレントリアミン ($m=2$)、トリエチレンテトラミン ($m=3$)、テトラエチレンペンタミン ($m=4$) 等と反応させる。

置換ピリミジン対アミンまたはポリアミンのモル比2:1で反応混合物は前記(b)型の式 ($m=0$) を有するビス- (置換ピリミジン) を含有すると

を有するアルケニルサクシンイミドアミン (末端置換原子) または構造



(式中 R^m はアルケニル基であり、 m および o は前記定義による) を有するビス (アルケニルサクシンイミド) アミン (内側置換原子の1つ) の塩基性置換原子の1つを塩基性炭素の特性を伴いピリミジンに結合させる。2つの反応体のモル比は(a)型化合物を製造するためには置換原子のすべてを置換するので変動する。対応するアルキルラクタムまたはビス (アルキルラクタム) アミンおよび他のアミノまたはアミノ置換基は同様に添付できる。置換置換基をもつ化合物、たとえばモノ-

考えられる。

置換モノハロ複素置換を予備形成したジアミノまたはジ (ポリアミノ) 複素置換化合物と2:1のモル比で反応させた場合最終生成物はトリス置換化合物 ($m=1$) を含むと考えられる。

別法としてアミノ基を含有する1または2の異なる置換置換化合物をジハロ複素置換化合物と反応させて混合トリス-置換生成物を製造できる。

上記からわかる通り、これらの反応順序を変え、または所望の最終の複素置換反応体と塩基性置換反応体を使用して非常に多様な連結生成物が得られる。更に置換置換化合物のアミノ置換基を繰返へしてより多くの連結置換基を分子に付属させる。かくて生成化合物は非常に高分子量であり、添加剤活性とともに優れた耐熱性を有する。本発

特開 昭49-22388(5)

明の方法により100,000以上の分子量をもつ添加剤が得られる。

本発明の開環化合物の製造においては、必要要件ではないが2連結を与えるような好ましいポリアミンとの反応の前にA、B、CまたはD置換元駆体の1つとハロゲン化複素化合物を反応させることが望ましい。たとえばトリクロロピリミジンとアンモニアまたはアミンまたはアクリンまたはサクシンイミドアミンまたはラクタムアミノまたはピロリジンアミン、またはマンニツヒ環素化合物との反応を好ましくは2連結を与えるポリアミンとの反応に先行させることである。

本発明の他の態様において、ハロゲン化複素化合物を予備形成アルケニルサクシンイミドまたはアルキルラクタムと反応させる代りに、複素環

化合物を少なくとも2つの第1アミノ基をもつポリアミンと反応させ、次いで生成物に環状複素環-ポリアミン化合物をアルケニルサクシン無水物またはラクトシを反応させて無水物またはラクトンのモル当り1モルの水を除去する。ポリアミンの末端第1アミノ基は内留型よりもより好ましく、イミドまたはラクタムを与えるものと考えられる。もしポリアミンが第2アミノ基を有する場合には生成物はアミンとなると考えられる。

これに反してビス-アルケニルサクシンイミドアミンまたはビスラクトンアミン反応体との反応は内部型複素環素原子の1つを含むものと考えられる。これらの最終生成物の実際の構造は全く知られていない。前記の反応順序が逆または類似化合物の製造に利用される。

アルケニルサクシンイミドアミン、アルキルラクタムアミン、アルキルピロリジンアミンおよびアルキル置換マンニツヒ環素の製造は本発明の重要部分ではない。サクシンイミドは米国特許第1,728,922号に記載されたように最初オレフィンと無水マレイン酸との間で反応させ、次いでその生成物をアミンと反応させて製造する。ラクタムアミンはラクトンとアミンの反応および環状生成物を生ずるための水の除去によって製造する。テトラヒドロピロリジンはサクシンイミドおよびラクタムの還元または他の既知の方法により製造する。マンニツヒ環素は米国特許第3,368,972号記載のようにアルキルフェノール、アルデヒドおよびアミンの反応により製造される。

本発明の新規反応生成物は更に水および/または

は金属塩溶性溶媒で洗滌処理する。最終生成物中の金属の残留量は工業用媒体中の生成物の機能を果たすのに支障のないことが判明した。実際これら生成物中の金属、たとえばアルカリ金属またはアルカリ土類金属陽子ナトリウム、カリウム、リチウム、カルシウム、バリウム、マグネシウム、ストロンチウムまたは亜鉛、ニッケル、マンガンの約0.05-5重量%の存在は有益であり、この点に必要ではないが、わざと反応生成物に対し水酸化物、酸化物、炭酸塩、カーボキシレート、アルコラートまたは石炭酸塩または他のベース増材の形態で金属を加えることが望ましい。

本発明の化合物の有効性は連結した高分子量化合物または重合体化合物の存在に依存するものと信じられる。付加的な置換基たとえば、アミノ、

特開 昭49-22388 (G)

アルキルアミノ、フェリノ基等の存在は重合体構造中に化学吸着性の安定な「アンカー」(anchor)基を提供する。これらの基は固体表面に対し強力な吸着を可能にし、たとえ媒体中に懸濁粒子を含むとしても工業用流体媒質と接触させた場合、これら添加剤は吸着された微細粒のみならずまた高い温度におけるより大きい安定性を与える。

洗淨性能は本発明の連続構造物により増強されることが知られている。その上耐酸化性状は媒体媒質の高温沈積物形成を抑える。これら添加剤はまたある程度耐摩耗性状を与えると思われ且有機媒体性能の低下を防ぐための充分な水および酸素解吸度を有する。

本発明の添加剤は工業用流体の配合処方において単独で、または従来用いられた他の既知の添加

剤と組合せて用いられる。

下記実施例は本発明の好ましい態様を説明する目的のものであつて本発明の範囲を限定するものではない。

これらの実施例により製造した生成物はウオタース Associates Permeation Chromatograph (Waters Associates Permeation Chromatograph)、モデル 200 を室温で溶剤ベンゼン中、カラム 50/80Å, 80/100Å, 350/700Å および 700/2000Å を用いて操作するゲル透過クロマトグラフィーにより分析した。その手順はジャーナル・オブ・ケミカルエデュケーション、第 43 巻、頁 A 567 (1966) などの文献に記載されている。

これらの実施例中、主要成分は構造または名称

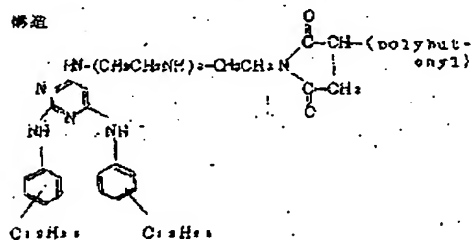
を以つて説明する。これら生成物の命名または描写は便宜上生成したと考えられる分子の型を記述する。

実施例 1

攪拌機およびコンデンサーを備えた適切な反応器に 1.82g (0.1モル) の 2,4,6-トリクロロピリミジンおよび 5.2g (0.2モル) のドデシルアミンを加えた。混合物を 90 分間 150-180°C に加熱し、その間に塩化水素の発生は終わった。

この 2-(ドデシルアミノ)トリクロロピリミジンに 2.0g (0.1モル) のテトラエチレンベンチオンを加えた。反応混合物を 3 時間、190-210°C の温度で加熱し、次いで分子量 1.350 を有するポリブタンと無水マレイン酸を反応させて得た

1.35g (0.1モル) のポリブタンと無水マレイン酸を加えた。反応混合物を 5 時間、150-180°C で攪拌し、この間に凝縮水を除去した。水の凝縮が終わった後、真空および室温で乾燥し、150°C、1 時間保持して反応を停止した。最終反応生成物の収量は 1.70g であり、指定構造



をもつ化合物を含む。

反応混合物はまた少量のナフチドに溶解する化合物を含むものと考えられる。

特開昭49-22388の

N計算値：約5%
分析結果：
N実測値：4.25%

実施例 2

実施例1と同様の装置に50g (0.165モル)の2,4,6-トリクロロピリミジンおよび970g (0.35モル)のテトラエチレンベンタミンのビス-ポリブタニルサクシンイミド(分子量約900のポリブタニル基をもつ)を加えた。

反応混合物を7時間、150-180℃に加熱し、冷却し、トルエン1500ccに溶解し、そして12.5% NaOH溶液200ccで2回、蒸留水250ccで2回洗滌した。洗滌中エマルジョンを解くためにローブタノールを用いた。

洗滌した材料は真空および気相下で2時間、150℃まで蒸留した。最終反応生成物の収量は

の収量は270g(理論量の96%)であり、下記の分析値をもつ。

計算値：N%, 2.6; 塩基性N%, 1.2; C%, 0

実測値：N%, 2.36; 塩基性N%, 0.98; C%, 0.15

実施例 4

実施例1と同様の反応器で32g (0.2モル)の2-アミノ-4,6-ジクロロピリミジンを、550g (0.2モル)の実施例2のビス-ポリブタニルサクシンイミドと170cc、2時間反応させた。この生成物に20g (0.1モル)のテトラエチレンベンタミンを加え、そして混合物を175-180℃において5時間加熱した。反応混合物は実施例2と同じように処理した。

主として何型のビス-置換-ピリミジンジアミン(但し $\chi = 0$ 、Aは-NH₂であり、Bはビス-

940g(理論量の96%)であり、その主たる成分は2,4,6-トリ-置換ピリミジン(但し置換基はビス-サクシンイミド反応体から得られた)であると考えられる。

分析値：計算 N%, 2.2; 塩基性 N%, 1.1; C%, 0

測定 N%, 2.26; 塩基性N%, 0.97; C%, 0.17

実施例 3

反応器に85g (0.05モル)の2-アミノ-4,6-ジクロロピリミジンと300g (0.1モル)のビス-ポリブタニルサクシンイミド(実施例2の)を加えた。反応混合物を200-220℃に6時間加熱し、この間に塩化水素を放出した。

生成した反応混合物を実施例2と同様に処理した。主として2,4-ジ置換-6-アミノピリミジン相当のものを含むと考えられる残留反応生成物

サクシンイミドから誘導される)を含む反応生成物の収量は565g(理論量の96%以上)であった。分析値は下記の通りである。

計算値：N%, 3.6; 塩基性N%, 2.2; C%, 0

実測値：N%, 3.23; 塩基性N%, 1.54; C%, 0.32

実施例 5

実施例3と同様の手順を用い、シアマル或クロライドとアンモニアガスを反応させて製造したアミノクロロトリアジン1-キルと実施例2のビス-ポリブタニルサクシンイミド反応体の2モルを反応させた。

得られた生成物は主として2個のサクシンイミドアミノ置換基をもつアミノトリアジンから成り、収量は理論量の96%であり、下記の分析値をもつ。

計算: N%, 2.61; 塩基性N%, 1.2

実測: N%, 2.20; 塩基性N%, 0.81

実施例 6

実施例 5 と同じ手順および反応条件を用い、1モルのアミノジクロロトリアジンと分子量 1,300 のポリブタンから誘導したテトラエチレンペンタミンのビス-ポリブタニルサクシニイミド 3 モルを反応させた。置換トリアジン収量は理論量の 95% であり、分析値は下記の通りである。

計算: N%, 3.5

実測: N%, 3.3

実施例 7

適当な反応器に、8g (0.05 モル) の 2-アミノ-4,6-ジクロロピリミジンと 75g のプロセスオイル (精製-精製鉱油) および 140g (

トリクロロピリミジン 3 モルのテトラエチレンペンタミンのビス(アルキルサクタム) (ここにアルキル基は分子量約 900 をもつポリブタン基である) と混合した。

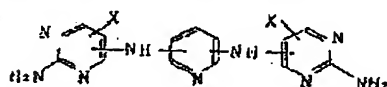
得られた生成物は対応するトリ-置換ピリミジンを含むと考えられる。

実施例 9

実施例 2 と同様の方法により、1モルの 2-アミノ-4,6-ジクロロピリミジンと 2モルのマンニツヒ塩基(分子量約 900 のポリプロピルフェノール、テトラエチレンペンタミンおよびホルムアルデヒドをモル比 2:1:2 で反応させて製造した)を反応させた。得られた生成物はマンニツヒ塩基で置換された対応するアミノピリミジンを含むと考えられる。

特開 昭 49-22388 (公)

0.05 モル) のビス-ポリブタニルサクシニイミド(ポリブタン分子量約 900) と混合し 16.0-17.0℃ で 5 時間加熱した。次いで 4g (0.025 モル) の 2,6-ジアミノピリジンを加え、17.0-18.0℃ で 1.6 時間加熱を継続した。生成物は実施例 2 に記載の通りに処理した。最終生成物の収量は 21.5g (理論量の 95%) であり、下記構造を有するものと考えられる。



式中 X = ビス(ポリブタニルサクシニイミド)アミノ基

計算値: N%, 2.3; 塩基性 N%, 0.75; C%, 0

実測値: N%, 2.48; 塩基性 N%, 0.64; C%, 0.02

実施例 8

実施例 2 と同様の方法により、1モルの 2,4,6-

上記実施例に説明した本発明の反応生成物は 1 個またはそれ以上の有用性のある複素環系化合物を有することを示している。ここに使用した構造または命名は主たる成分を表わすと考えられる。また最終反応生成物中には同定しにくい他の成分も存在し、望ましい有用な機能を与えるものと考えられる。

生成物の評価

本発明の添加物は潤滑油中でそれらの有用性を示すための一連の試験を行った。

(1) 洗浄特性を示す試験およびビルピン酸試験は米国特許第 3,368,972 号に記載されている。試験オイルは精製鉱油希釈(210°F にかける SUV, 64.1) と 1 重量% 亜鉛ジアルキルホスホロジチオエートの混合物から成る。このオイルへ

特開 昭特-22388 (8)

本発明化合物の重量多を加える。試験試験において結果が低ければ低いほど添加剤はすぐれている。ビルビン酸試験においては結果が高ければ高いほど添加剤はすぐれている。試験の結果は下記の通りである。

試験オイル	試験試験	ビルビン酸試験
単 酸	0.102	55.6
実施例1生成物	0.002	99.6
2 "	0.006	99.9
3 "	0.004	99.9
4 "	0.004	99.9

(2) 本発明の化合物はまた潤滑油添加剤として酸化安定性または酸化防止剤試験を行った。この試験法は定速で流れる空気が第2の酸化装置および窒素ガスとの定流とを、混合タンク中で混合す

テストの期間は70分である。

このテストの評価はシャフトのアルミニウム被膜上に堆積してくるラッカーのようなオイル酸化-被膜生成物の量に基づいて行なう。

評価は視学的に下記により堆積物を分類して行なう。

- きれいなアルミニウム表面または極めて微少な堆積物；
- やや軽微または紅色の被膜；
- 軽微または金色で透明な被膜；
- 中微または褐色で半透明な被膜；
- 濃いまたは褐色で不透明な被膜；

および

- 非常に濃黒または濃褐色でざらざらした表面。

ることからなる。

ガス混合物は溶解ガラスハブラーを通して次のプレヒーターを通して水を飽和させる。加熱した流れを一定速度で反応器に導入する。

本発明化合物を含む試験オイル混合物試料(120°FにおけるSUVが8.61であることを驗し前試験に用いたものと同等)をプレヒートし、反応器のオイル貯槽に導入する。一定の速さで回転するように取付けたアルミニウムシャフトをオイル貯槽中に渡し、同時にシャフトの若干を水-空気のガス混合物にさらした。シャフトは温度約575°F(300°C)に保持した。かくしてシャフトが回転するにつれて貯槽からのオイルがシャフトを被膜し、次いで空気とオイル蒸気で潤された反応室の上壁にさらされ、薄いフィルムとなる。

評価の結果は下記の通りである。

オイル組成	濃度(重量)	評 価
オイルブレンド、添加剤なし	0	4.0, 4.5, 3.7
実施例2に用いたビス-サクシニミド炭酸塩	10%	4.5
実施例2生成物	5%	1.0, 1.1
実施例3生成物	5%	1.0
実施例4生成物	5%	1.0
実施例5生成物	6%	1.3

(3) 実施例4のビス-ピリミジン化合物を含むオイルに標準四球式摩耗試験を行った。このテストで52~200ミチールの3個のステールボールをボールカップ中のきまつた場所にて保持した。垂直のスピンドル上に定置した第4のボールをこれら3個のボールと接触させて回転する。3個の

特開 昭48-22388(10)

固定ボールに対し第4のボールをささえる力は強み弱りに変えられる。試験用潤滑油はボールカンブに添加され、回転の減摩剤としてはたらく。

試験の終りにスチールボールを取出し、摩損のあとを調べた。

きづ跡 (scar) の程度は生成物の耐摩耗としての有効性を示す。全くきづ跡のないのがすぐれた耐摩耗を示すことになる。

下記の一連の試験において、40℃および80℃の荷重を油温度30.40.50および50.0℃において10時間適用した。ボールの回転速度は600 r.p.m.またはすべり速度2.33 cm/sec.である。オイル媒体は低酸試験およびビルビン酸試験に使用したのと同じ鉱油混合物である。

添加剤濃度は5重量%である。

ブレーキ荷重, HP. 19.8

オイル温度, °F 150

ジャケット温度, °F 150

燃料 1%硫黄を含むディーゼル燃料

エンジンは480時間運転し、定期的に評価を行つた。これらの評価はピストン堆積物(100%が清浄である)、ラッカー欠点(0が清浄である)およびトップグループパッキング堆積物(0が清浄である)より成る。テストの結果は下記の通りである。

時 間, hr	120	240	480
ピストン評価	90.9	90.2	82
ラッカー欠点	3.7	4.3	9.6
トップグループ	620	680	920

最終生成物に代えて実施例3のビニールポリブテ

生成物	摩損スコア (mm)			
	40℃	80℃	300°F	500°F
実施例4生成物	0.531	0.690	0.844	0.807

単 独 0.745 0.785 0.895 0.908

実施例4生成物 0.531 0.690 0.844 0.807

(4) 実施例3の化合物をカタピラー-Gエンジンテストにより試験した。このテストに用いたオイル組成物は低酸およびビルビン酸テストに使用したのと同じ鉱油混合物であり、1.3%のマグネシウムアルキルベンゼンホルボネート、1.2%の亜鉛ジアルキルホスホロジチオエート、1.0%のポリプロピレン-バリウムホスホスホルボネートおよび2.5%の実施例3の生成物を含む。

テストエンジンは単シリンダー、4-サイクルカタピラエンジンであり、上記の条件で運転した。

速度, r.p.m. 1000

ニルサクシンイミド反応体を含む同じ潤滑油処方を使用した場合、120時間後のピストン評価は8.4であり、240時間後の評価は6.8である。ラッカー欠点は120時間、240時間に対し夫々2.6および2.1.4であり、トップグループパッキングは夫々3.5および3.1である。

(5) 実施例1の生成物は炭素原子5-9個のカルボン酸でエステル化したペンタエリスリトールから製造したエステル潤滑剤につき酸化試験を行つた。この生成物の濃度は2重量%である。

試験オイルに鉄、銅、鉛およびアルミニウムの存在下、温度425℃および450℃において酸化の処理を受けさせた。試験は24時間実施した。

空気の流速は約10 L/時である。

銅は酸化腐食をより受け易い金属であるので銅

試料はこのテストの前および後に計量した。測定は鉛損失(μ)、ASTM-D-974(NN)により測定する中和価および210°Fにおける運動粘度率の変化(KV)について行なう。

テスト試料 NN KV増加(%) 鉛ロス(μ)

オイル単独	425P	825	422	13.8
450P	10.15	1280		19.4

オイル+実施例1生成物	425P	0.45	73	4.4
450P	1.62	86		14.4

(6) 本発明の生成物を炭化水素溶液中各種濃度において水を溶解する能力の試験を行つた。この特色は水が存在する可能性があり且それにより流体の作用に悪影響を及ぼすような工業用流体を用いる系において特に興味がある。これらの試験目的にはベンゼンまたはノルマンオクタンまたは

この試験は、添加剤が従来の潤滑油添加剤に比してオイルのエマルジョンを形成したりまたは潤滑剤としての有効性を低減することなしに水を溶解する改善された能力を示すことを述べたものである。

かくて本発明による化合物は液体潤滑油およびグリース等工業用流体に多くの異なる有用な機能を提供する。これらの添加剤はまた燃料、自動伝導流体、熱交換流体、金属工作液、切削剤および合成樹脂、プラスチック、ペイント被覆物等の分野に有用であろう。

本発明の範囲は前記記載に限定し、特許請求の範囲内において各々の修正、変更を行いうるものである。

特開 昭49-22380(11)

試験を用いる。添加剤試料を含む有機溶媒を水と混合し、24時間振動して攪拌した。次いで水相は少なくとも6000gの遠心機で5時間以上かけ分離した。炭化水素相中の含水量はカールフィッシャー分析により決定した。

添加剤試料5重量多を含む、テスト2のそれにはオイル混合物を1:1の割合でノルマンオクタンと混合した。この混合物試料を等容量の水と混合した。攪拌および分離過程の終りにかける有機相中の、カールフィッシャー分析により決定し、元水の量は凡記の通りである。

添加剤	水(重量%)	炭化水素相中水(重量%)
実施例2生成物	1.00	6.2
実施例3生成物	0.41	2.6
実施例2のサクションミッドポイント0.05		0.18

5. 添付書類の目録

- (1) 委任状及訳文 各1通
- (2) 優先権証明書及訳文 各1通
- (3) 明細書 1通

6. 前記以外の発明者または代理人

(1) 発明者

住所 アメリカ合衆国ニュージャージー州 08540, プリンストン, リンウッド・サークル47番
氏名 イスラエル・ジョエル・ハイルウエイル

(2) 代理人

住所 東京都千代田区大手町二丁目2番1号
新大手町ビル 206号室
氏名 (6355) 弁護士 池 永 光 領

特開 昭49-22388 (i2)

平 威 補 正 書

昭和48年7月23日

特許庁長官 三宅 幸夫 殿

1. 事件の表示

昭和48年特許願第 45212 号

2. 発明の名称

多官能添加剤

3. 補正をする者

事件との関係 出願人

住 所

名 称 (740) モービル・オイル・カーボレーション

4. 代理人

住 所 東京都千代田区大手町二丁目2番1号
新大手町ビル 206号室

氏 名 (2770) 弁護士 湯 浅 恭 三

5. 補正の対象

明細書の〔発明の詳細な説明〕の欄

6. 補正の内容

別紙の通り

6. 補正の内容

(1) 明細書の記載を次の通り訂正する。

頁	行	原記載	訂正後
12	3	$ \begin{array}{c} \text{O} \\ \parallel \\ -\text{C}_6\text{H}_{12}-\text{N}-\text{C}-\text{CH}-\text{R}^1 \\ \parallel \quad \parallel \\ \text{C} \quad \text{CH}_2 \end{array} $	$ \begin{array}{c} \text{O} \\ \parallel \\ -\text{C}_6\text{H}_{12}-\text{N}-\text{C}-\text{CH}-\text{H}^1 \\ \parallel \quad \parallel \\ \text{C} \quad \text{OH}_2 \end{array} $
29	4	混合した。	混合した。
33	5	視学的	視覚的
36	3	300° 400°	300° 400°
36	下2	上記の条件	下記の条件
37	8, 14	トシブグループ	トシブグループ
38	5		
39	下1	ノルマンオクタン	ノルマルオクタン

以 上

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.